

(19)



JAPANESE PATENT OFFICE

PATENT ABSTRACTS OF JAPAN

(11) Publication number: **06108190 A**

(43) Date of publication of application: **19.04.94**

(51) Int. Cl.

**C22C 19/07**  
**C22C 33/02**  
**C22C 38/00**  
**H01F 1/053**  
**// H01F 7/02**

(21) Application number: **04280829**

(22) Date of filing: **25.09.92**

(71) Applicant: **SHIN ETSU CHEM CO LTD**

(72) Inventor: **TAKAGUCHI KAZUHIRO**  
**YAMAMOTO KENJI**

**(54) RARE EARTH PERMANENT MAGNET ALLOY**

(57) Abstract:

PURPOSE: To develop a rare earth permanent magnet alloy having superior magnetic properties by controlling the composition of a cellular structure in an  $R_2Co_{17}$  type rare earth magnetic alloy with specific composition.

CONSTITUTION: An ingot of an alloy having a composition consisting of, by weight, 24-28% R (one or more kinds among rare earth elements), 10-20% Fe, 3-6% Cu, 2-4% Zr, and the balance Co is crushed, pulverized, and compacted into desired shape in a

magnetic field. The resulting green compact is heated, e.g. to 1100-1250°C to be sintered, and subjected to solution heat treatment at a temp. lower by 0-50°C than the above temp. Subsequently, ageing treatment is applied at 700-950°C to form a fine cellular structure, and the content of Cu contained in the  $R_2Co_{17}$  phases constituting the cells is controlled to 1-3 atomic %. By this method, the  $R_2Co_{17}$  type rare earth permanent magnet improved in magnetic properties as to have  $^{*}20\text{KOe}$  coercive force can be produced.

COPYRIGHT: (C)1994,JPO&Japio

(19)日本国特許庁(JP)

(12) 公開特許公報(A)

(11)特許出願公開番号

特開平6-108190

(43)公開日 平成6年(1994)4月19日

(51)Int.Cl. <sup>5</sup>	識別記号	庁内整理番号	F I	技術表示箇所
C 2 2 C 19/07	E			
33/02	H			
38/00	3 0 3 D			
H 0 1 F 1/053				
			H 0 1 F 1/ 04	B
			審査請求 未請求	請求項の数 1(全 4 頁) 最終頁に続く

(21)出願番号 特願平4-280829

(22)出願日 平成4年(1992)9月25日

(71)出願人 000002060

信越化学工業株式会社

東京都千代田区大手町二丁目6番1号

(72)発明者 高口 和博

福井県武生市北府2丁目1番5号 信越化学工業株式会社磁性材料研究所内

(72)発明者 山本 健治

福井県武生市北府2丁目1番5号 信越化学工業株式会社磁性材料研究所内

(74)代理人 弁理士 山本 亮一 (外1名)

(54)【発明の名称】 希土類永久磁石合金

(57)【要約】 (修正有)

【構成】重量百分率で、24～28%のR(Rは希土類元素のうち1種以上)、10～20%のFe、3～6%のCu、2～4%のZr、残部Coからなり、かつR<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>相から成る微細なセル状組織のセル内のCu量が1原子%以上3原子%以下の範囲内であることを特徴とする希土類永久磁石合金。

【効果】本発明によれば、保磁力が20kOeを超えるような高特性R<sub>2</sub>Co<sub>17</sub>系希土類永久磁石合金を製造することができ、産業上その利用価値は極めて高い。

## 【特許請求の範囲】

【請求項1】重量百分率で、24～28%のR（Rは希土類元素のうち1種以上）、10～20%のFe、3～6%のCu、2～4%のZr、残部Coからなり、かつ $R_2Co_{17}$ 相から成る微細なセル状組織のセル内のCu量が1原子%以上3原子%以下の範囲内であることを特徴とする希土類永久磁石合金。

## 【発明の詳細な説明】

## 【0001】

【産業上の利用分野】本発明は、 $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金に関するものである。

## 【0002】

【従来の技術】希土類永久磁石合金としては、現在、 $R_2Co_{17}$ 系磁石合金と $R_2Fe_{14}B$ 系磁石合金とが一般に使用されている。通常、 $R_2Fe_{14}B$ 系磁石合金の方が最大エネルギー積が大きいと幅広く利用されているが、 $R_2Fe_{14}B$ 系磁石合金はキュリー温度が約300℃と低いと100℃を超えるような高温では磁気特性が極端に低下してしまい使用に耐えない。反面、 $R_2Co_{17}$ 系磁石合金はキュリー温度が約800℃と高いため、高温においては $R_2Fe_{14}B$ 系磁石合金よりも磁気特性が高くなり、高温での使用では $R_2Co_{17}$ 系磁石合金が用いられており、用途が限定されつつもさらなる高特性を目指して研究開発が進められている。 $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金はその組織構造として微細なセル状組織を有していることはよく知られている。このセル状組織は、500～5,000 Åのセル径をもつ $R_2Co_{17}$ 相からなるセルと、幅50～200 Åの境界相である $RCO_5$ 相とからなっている。 $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金は、この微細なセル状組織に磁壁がピンニングされることにより保磁力が発生するピンニング型の磁石である。従って、微細構造であるセル状組織と磁気特性は密接に関係しており、セル状組織を適切に制御することにより、磁気特性を高めようという試みが従来からなされてきた。例えば、特開昭 56-156734号および特開昭 56-156735号では、セル状組織のセルとセルとの距離を適当な大きさに制御することにより15K0eを超えるような大きな保磁力を得ている。

## 【0003】

【発明が解決しようとする課題】しかしながら、セル状組織の制御は未だ十分に行われていたとは言えず、セル状組織を十分に制御することによって $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金のさらなる高特性化が期待できる。

## 【0004】

【課題を解決するための手段】本発明者等は、微細なセル状組織と磁気特性について鋭意研究を続けた結果、セル内のCuの量が磁気特性、特に保磁力に大きな影響を及ぼし、セル内のCu量を適切に制御することにより保磁力が20K0eを超えるような高特性な $R_2Co_{17}$ 系永久磁石を製造することに成功し、本発明を完成した。本発明の要旨は、重量百分率で、24～28%のR（Rは希土類元素のう

ち1種以上）、10～20%のFe、3～6%のCu、2～4%のZr、残部Coからなり、かつ $R_2Co_{17}$ 相から成る微細なセル状組織のセル内のCu量が1原子%以上3原子%以下の範囲内であることを特徴とする希土類永久磁石合金である。

【0005】以下、本発明を詳細に説明する。 $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金は、一般に、次のような工程により製造される。まず、所定量の原料金属を秤量して高周波溶解炉またはアーク炉などの溶解炉で溶解しインゴットを鍛造する。次いでこのインゴットをジョークラッシャー、スタンプミル、ブラウンミル等を用いて粗粉碎し、ジェットミル、ボールミル等により粒径1～50 μmになるように微粉砕を行う。次にこの微粉を磁場中で所望の形に圧縮成形した後、1,100～1,250℃で焼結し、続いて焼結温度よりも0～50℃低い温度で溶体化する。焼結、溶体化に要する時間は、0.5～5時間が適当である。最後に時効処理として、通常初段時効を700～950℃で一定時間保持し、その後、連続冷却または多段時効を行う。上記の各工程は、 $R_2Co_{17}$ 系合金が酸化されると特性の劣化が著しいので、これを防止するため真空中または非酸化性の雰囲気下で行われる。

【0006】溶体化処理終了直後の $R_2Co_{17}$ 系合金はTbCu<sub>7</sub>型の結晶構造を示すが、次工程の時効処理により、 $R_2Co_{17}$ 相と $RCO_5$ 相とに分離し、微細なセル状組織を形成する。セル状組織は初段時効時に形成され、そのセルの大きさは、概ね初段時効の温度で決まる。その後の連続冷却または多段時効により各構成元素が拡散し、セルを構成する $R_2Co_{17}$ 相、境界を構成する $RCO_5$ 相の組成は変化していく。R、Cuは境界相へと拡散し、Co、Feはセル内へと拡散するがZrは殆ど拡散しない。 $R_2Co_{17}$ 相と $RCO_5$ 相の組成が変化するにつれて、 $R_2Co_{17}$ 系磁石合金の特性も変化していく。

【0007】本発明の最大の特徴は、これらの構成元素の内、セル内に拡散するCuの量が保磁力に大きな影響を及ぼすことを見出し、その量を制御したことにある。セルを構成する $R_2Co_{17}$ 相に含まれるCu量が3原子%を超えると $R_2Co_{17}$ 系磁石合金の保磁力は小さくなってしまいが、これは $R_2Co_{17}$ 相の結晶磁気異方性が小さくなるためだと考えられる。従って、大きな保磁力を得るために、セルの $R_2Co_{17}$ 相に含まれるCu量を3原子%以下となるように時効処理すればよいが、1原子%以下にするためには長時間の時効処理を必要とし製造上不利であるので、セルの $R_2Co_{17}$ 相に含まれるCu量は1原子%以上3原子%以下の範囲内に限定される。

【0008】次に、 $R_2Co_{17}$ 系永久磁石合金の組成を重量百分率で、24～28%のR（Rは希土類元素のうち1種以上）、10～20%のFe、3～6%のCu、2～4%のZr、残部Coと限定したのは、以下のような理由からである。 $R_2Co_{17}$ 系永久磁石合金中に含まれるRの量が、28重量%を超えるとBrが低下し、24重量%未満では角型が悪くな

る。ここにRは、Yを含むLa,Ce,Pr,Nd,Pm,Sm,Eu,Gd,Tb,Dy,Ho,Er,Tm,YbおよびLuの内から選択される1種または2種以上の混合元素であり、好ましくはSmである。また、 $R_2Co_{17}$ 系永久磁石合金中に含まれるFe量が、10重量%未満ではBrが低下してしまい、20重量%を超えると保磁力が低下し、Zr量が2重量%未満では十分な保磁力が得られず、4重量%より多くなると最大エネルギー積の低下を引き起こす。更にCu量が3重量%未満では保磁力が低くなってしまい、6重量%より多くなるとBrの低下をもたらす。

【0009】

【実施例】以下、本発明の実施態様を実施例を挙げて具体的に説明するが、本発明はこれらに限定されるものではない。

(実施例1) 合金組成がSm25.5重量%、Fe14重量%、Cu4.5重量%、Zr3重量%、残Coとなるように原料金属を秤量した後、これらを高周波溶解炉にて溶解し合金インゴットを作製した。得られた合金インゴットをブラウンミルを用いて粗粉碎し、その後ジェットミルで微粉碎を行った。微粉碎後の合金粉の平均粒径は約5 $\mu$ mであった。この合金粉を磁場中で成形を行い、得られた成形体を1,200℃で焼結、1,180℃で溶体化した。次いで時効処理はまず初段時効として850℃で2時間保持した後、5℃/min、1℃/min、0.2℃/min、のそれぞれの冷却速度で400℃まで連続冷却を行い、急冷した。得られた永久磁石は、磁気特性を測定し、透過電子顕微鏡で微細組織を観察し、エネルギー分散型X線分析装置で微細組織のセル内の組成のCuの定量分析を行った。得られた結果を表1に示す。

【0010】

【表1】

冷却速度 (℃/min)	保磁力 (kOe)	平均セル径 (Å)	セル内Cu量 (原子%)
5	8.4	710	3.8
1	15.6	700	3.3
0.2	22.1	710	2.2

10

20

30

40

【0011】(実施例2) 実施例1と同様な条件で焼結体を作成し、その後次のような時効処理を施した。すなわち、初段時効として870℃で1、2、5、10時間保持した後、1℃/minの冷却速度で400℃まで連続冷却し急冷した。得られた永久磁石は、磁気特性を測定し、透過電子顕微鏡で微細組織を観察し、エネルギー分散型X線分析装置で微細組織のセル内の組成のCuの定量分析を行った。得られた結果を表2に示す。

【0012】

【表2】

保持時間 (時間)	保磁力 (kOe)	平均セル径 (Å)	セル内Cu量 (原子%)
1	7.5	670	4.1
2	12.9	670	3.4
5	20.3	680	2.8
10	22.6	700	2.0

【0013】(実施例3) 実施例1と同様な条件で焼結体を作製し、その後次のような時効処理を施した。すなわち、初段時効としてそれぞれ800℃、850℃、900℃で10時間保持した後、700℃で1時間、600℃で2時間、500℃で5時間、400℃で10時間の多段時効を行った。得られた永久磁石は、磁気特性を測定し、透過電子顕微鏡で微細組織を観察し、エネルギー分散型X線分析装置で微細組織のセル内の組成のCuの定量分析を行った。得られた結果を表3に示す。

【0014】

【表3】

初段時効温度 (℃)	保磁力 (Br)	平均セル径 (Å)	セル内Cu量 (原子%)
800	17.8	520	3.2
850	20.8	780	2.7
900	21.0	880	2.1

【0015】

【発明の効果】本発明によれば、保磁力が 20K0eを超え\*

\* るような高特性 $R_2Co_{17}$ 系希土類永久磁石合金を製造することができ、産業上その利用価値は極めて高い。

フロントページの続き

(51)Int.Cl.<sup>5</sup>

// H01F 7/02

識別記号

庁内整理番号

F I

技術表示箇所

Z